

DESCRIPCIÓN DE UN MODELO LOCAL DE LAS DISTRIBUCIONES DE CAMPO MAGNÉTICO HIPERFINO DE LAS ALEACIONES $\text{Fe}_{0.60}\text{Al}_{0.40}$ y $\text{Fe}_{0.65}\text{Al}_{0.35}$

C. González, Departamento de Ciencias Básicas. Universidad Pontificia Bolivariana Seccional Bucaramanga

Recibido Julio 19, 2010 – Aceptado Septiembre 2, 2010

<http://dx.doi.org/10.18566/puente.v4n2.a06>

Resumen—En este trabajo se presenta un modelo local basado en el método de distribución binomial para interpretar la distribución de campos hiperfino obtenidas las medidas de espectroscopia Mössbauer de las aleaciones $\text{Fe}_{0.60}\text{Al}_{0.40}$ y $\text{Fe}_{0.65}\text{Al}_{0.35}$ a $T = 292\text{K}$ y 77K . En el modelo, los átomos constituyentes se asumen distribuidos aleatoriamente en una red cristalina bcc de acuerdo con la estructura cristalina y el carácter desordenado de las muestras. Los resultados muestran la sustitución de átomos de Fe por átomos de Al en el primer vecindario, produce una reducción del campo hiperfino de 16.9T y 23.4T a 292K y 77K respectivamente para $\text{Fe}_{0.60}\text{Al}_{0.40}$ y de 22.3T y 24.3T a 292K y 77K respectivamente para $\text{Fe}_{0.65}\text{Al}_{0.35}$. A diferencia de esto, sustituciones de Al en el segundo vecindario, producen una reducción del campo hiperfino de 4.6T y 6.9T , para ambas temperaturas y concentraciones. El modelo también permite obtener el valor del campo hiperfino medio, así como determinar las configuraciones (sitios) más probables del sistema, involucrando primeros y segundos vecinos. Las curvas teóricas obtenidas por el método de distribución binomial y las experimentales obtenidas por espectroscopia Mössbauer ajustan muy bien, al igual que los datos experimentales y los teóricos.

Palabras clave— Sistema FeAl, interacciones hiperfinas, Método de distribución binomial, Espectroscopia Mössbauer.

Abstract— A the local model based on binomial distributions method was present to give an interpretation of hyperfine magnetic field of the results of interactions hyperfine obtained by Mössbauer spectroscopy of the $\text{Fe}_{0.60}\text{Al}_{0.40}$ y $\text{Fe}_{0.65}\text{Al}_{0.35}$ systems alloys at to $T = 292\text{K}$ and 77K measurements. In the model, the constituent atoms are assumed to be randomly distributed in a bcc lattice accordingly with the disordered character of the system and its crystalline structure. Results showed that the

substitution of an iron atom by an aluminum atom, in the first Fe coordination shell, produces a reduction in the hyperfine field of 16.9T and 23.4T at 292K and 77K respectively for $\text{Fe}_{0.60}\text{Al}_{0.40}$ alloy and of 22.3T and 24.3T at 292K and 77K respectively, for $\text{Fe}_{0.65}\text{Al}_{0.35}$ alloy. The model also allows to obtain the average hyperfine field as well as to determine the most probable configurations (site) of the systems, involving nearest and next nearest neighbors. The theoretical curves obtained by binomial distribution method have fitted quite well with the experimental obtained by

Mössbauer spectroscopy ones and the fitting parameters show that, in agreement with the experimental data.

Keywords— Fe–Al system. Hyperfine interactions, binomial distribution method, spectroscopy Mössbauer.

I. INTRODUCCIÓN

El método de distribución binomial es un método estadístico que permite calcular las probabilidades de un evento dependiendo de la aleatoriedad de su(s) variable(s). Este método se ha aplicado para estudiar sistemas magnéticamente desordenados en los cuales se ha inducido aleatoriedad a través de desorden atómico, tal es el caso de los sistemas: FeNi [1], [2] y FeAl [3]; sistemas magnéticos desordenados para los cuales la distribución de campo hiperfino calculada se ajusta bien con la obtenida experimentalmente.

En el presente trabajo, se reportan los resultados obtenidos de implementar el método de distribución binomial para ajustar las curvas de distribución de campo hiperfino obtenidas de los ajustes de los espectros Mössbauer usando el programa Normos [4] de las aleaciones $\text{Fe}_{0.60}\text{Al}_{0.40}$ y $\text{Fe}_{0.65}\text{Al}_{0.35}$ medidos a 292K y 77K . Las curvas de la distribución de campo hiperfino obtenidas por el método de distribución binomial en adelante ajuste teórico y las curvas obtenidas de la distribución de

¹ Claudia González. Ph.D. en Ciencias Física de la Universidad del Valle, Cuervo, Líder del Grupo de Investigación en Materiales “GIM”

e-mail: claudia.gonzalez@upb.edu.co

campo hiperfino del ajuste con Normos de los espectros Mössbauer en adelante ajuste experimental son comparadas. También se reportan las configuraciones atómicas de primeros y segundos vecinos del Fe obtenidas del método de distribución binomial para las dos aleaciones en cada una de las temperaturas.

II. PROCEDIMIENTO EXPERIMENTAL Y TEÓRICO.

Las aleaciones: $\text{Fe}_{0.60}\text{Al}_{0.40}$ y $\text{Fe}_{0.65}\text{Al}_{0.35}$ fueron preparadas con polvos de alta pureza (99.9%), de Fe y Al de acuerdo con la estequiometría. En cada una de las muestras, los polvos se mezclaron en vicker's, posteriormente fueron prensados y fundidos en presencia de Argón, para evitar contaminación, el peso aproximado cada muestra, fue de aproximadamente, 2.0g. El desorden fue inducido en cada aleación, luego de ser fundida; a través de un tratamiento térmico de 1000°C durante una semana y luego templada en agua hielo rápidamente [5], [6]. El desorden inducido es de tipo atómico; de manera que se obtienen una serie de configuraciones atómicas más probables con su correspondiente valor de campo magnético hiperfino medio $\langle H \rangle$. Las configuraciones a que se hacen referencia son sitios de Fe reemplazados en el primer y segundo vecindario por átomos de Al.

Para las medidas Mössbauer se extrajeron polvos de cada aleación con un lima de diamante, que luego fueron depositados en cápsulas de plexiglás de 3 cm² con una cantidad correspondiente a 5 mg de Fe natural por cm², en esta fueron mezclados con nitruro de boro (BN) para obtener una pasta homogénea. Los espectros Mössbauer fueron tomados usando un espectrómetro de aceleración constante con una fuente de ⁵⁷Co/Rh; a 292 y 77K. Los ajustes experimentales para la aleación $\text{Fe}_{0.60}\text{Al}_{0.40}$ se hicieron incluyendo un singlete y un doblete para dar cuenta de los sitios no magnéticos (simétricos y asimétricos) y dos distribuciones de campo hiperfino para dar cuenta de sitios de Fe con mayor y menor probabilidad magnética. Para la aleación $\text{Fe}_{0.65}\text{Al}_{0.35}$ el ajuste experimental se hizo sólo con una distribución de campo para dar cuenta solo de sitios de Fe magnéticos. Es importante aclarar que los ajustes experimentales se hicieron de varias formas optándose por las anteriormente descritas como la mejor, dado estudios realizados anteriormente [7], [8]. Los valores de los desvío isomérico fueron referidos con el Fe natural.

A continuación se presenta el modelo del método de distribución binomial usado para ajustar las curvas de campo hiperfino.

Modelo de distribución binomial.

De acuerdo con el carácter desordenado de las muestras, el modelo asumido obedece la siguiente función de probabilidad:

$$P(n, m) = C_8^n C_6^m x^{m+n} p^{(14-n-m)} \quad (1)$$

donde, $P(n, m)$ representa la probabilidad de tener una configuración con n átomos de Al ($0 \leq n \leq 8$) que sustituyen átomos de hierro en el primer vecindario y m átomos de Al ($0 \leq m \leq 6$) que sustituyen átomos de hierro en el segundo vecindario. (Para el caso de una estructura bcc, n corre desde 0 hasta 8; m desde 0 hasta 6). Es importante aclarar que el tipo de estructura que presentan las aleaciones $\text{Fe}_{0.60}\text{Al}_{0.40}$ y $\text{Fe}_{0.65}\text{Al}_{0.35}$ es bcc según análisis por difracción de rayos x. Los valores x y p representan la concentración fraccional de Al y Fe respectivamente. Los dos primeros términos de la expresión son los coeficientes binomiales dados por:

$$C_8^n = \frac{8!}{n!(8-n)!}; \quad C_6^m = \frac{6!}{m!(6-m)!}; \quad (2)$$

Cada coeficiente C_k^l representa el número de posibles configuraciones para lo cual l átomos pueden ser localizados en k sitios variables. Para cada uno de estos arreglos, se atribuye un campo magnético hiperfino de acuerdo con la formula empírica [9]

$$H = H_0(1 - \alpha n - \beta m)(1 - \eta(T - T_0)) \quad (3)$$

donde, $H_0 = 330\text{Oe}$ es el campo hiperfino para el Fe puro a temperatura ambiente, α y β son los factores que hacen decrecer el campo hiperfino del Fe debido a la sustitución de sitios de un átomo de Fe por uno de Al en el primer y segundo vecindario, respectivamente [9]. Y η es el parámetro que da cuenta de las contribuciones debidas al cambio de temperatura. T_0 es la temperatura ambiente 292K.

La distribución de campo hiperfino está dada por un histograma $P(n, m)$ en función de $H(n, m)$. El campo hiperfino medio $\langle H \rangle$ ésta calculado de la

suma de la suma de todas las contribuciones de los diferentes sitios de acuerdo a:

$$\langle H \rangle = \sum_n \sum_m P(n, m) H(n, m) \quad (4)$$

donde, se obedece la condición de normalización:

$$\sum_{(n,m,u,v)} P(n, m) = 1 \quad (5)$$

III. RESULTADOS Y DISCUSIÓN.

En la figura 1, presentan los espectros Mössbauer de las aleaciones $x = 0.60$ y 0.65 a 292 K. El espectro para $\text{Fe}_{0.60}\text{Al}_{0.40}$ fue ajustado con un singlete y un doblete para dar cuenta de los sitios desordenados (simétricos y asimétricos) presentes y dos distribuciones de campo (una a bajos y otra a altos campos), para dar cuenta de los sitios de Fe ordenados ferromagnéticamente [7], mientras que para $\text{Fe}_{0.65}\text{Al}_{0.35}$ el espectro se ajusto solo con una distribución, mostrando que esta aleación solo tiene sitios ordenados ferromagnéticos [8].

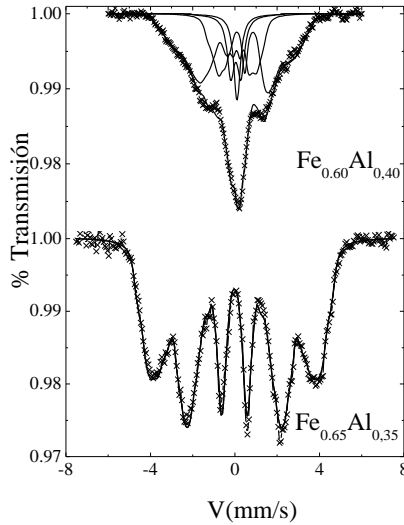


Fig. 1. Espectros Mössbauer tomados a 292K.

En la figura 2, se presentan el ajuste experimental (puntos y líneas negras) y el teórico (triángulos y líneas rojas). Puede verse que las dos distribuciones para $\text{Fe}_{0.60}\text{Al}_{0.40}$ ajustan muy bien, mientras que las

distribuciones para $\text{Fe}_{0.65}\text{Al}_{0.35}$ ajustan bien para el lado de campos altos, mientras que existe una discrepancia para bajos campos. También se pueden observar las configuraciones (n, m) para cada composición. Los valores del campo hiperfino medio obtenido tanto por Mössbauer como por el método de distribución binomial son muy cercanos. Los valores de campo hiperfino medio obtenidos por Mössbauer y el calculado por el método binomial así como los principales parámetros binomiales se encuentran consignados en la tabla I.

TABLA I
PARÁMETROS OBTENIDOS POR MÖSSBAUER Y EL MÉTODO DE DISTRIBUCIÓN BINOMIAL A 292 K.

	$\langle H \rangle$ (T) Möss.	$\langle H \rangle$ (T) Binomial	α	β
$\text{Fe}_{0.60}\text{Al}_{0.40}$	7.3	7.5	0.055	0.018
	16.3	16.9	0.051	0.016
$\text{Fe}_{0.65}\text{Al}_{0.35}$	21.4	22.3	0.068	0.020

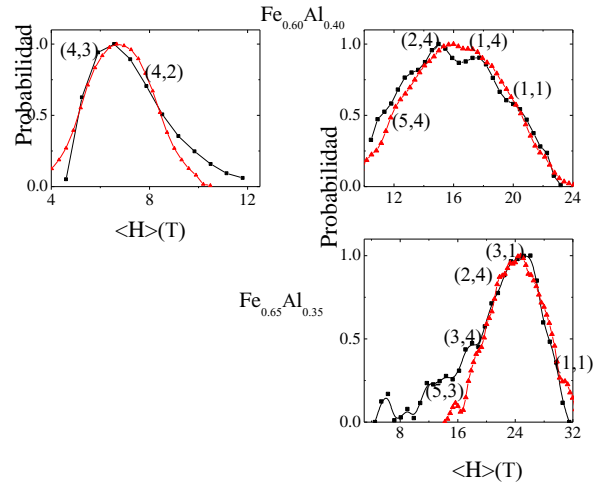


Fig. 2. Probabilidad Normalizada vs campo hiperfino. Las líneas con puntos y líneas negras corresponden a los campos obtenidos por Mössbauer y los triángulos y líneas rojas corresponden al método binomial a $T = 292$ K.

En la figura 3, se muestran los espectros Mössbauer para $\text{Fe}_{0.60}\text{Al}_{0.40}$ y $\text{Fe}_{0.65}\text{Al}_{0.35}$ tomados a 77 K. La forma de ajuste de los espectros es la misma que se utilizó para 292 K. Se encontró que a 77 K tanto para $\text{Fe}_{0.60}\text{Al}_{0.40}$ como para $\text{Fe}_{0.65}\text{Al}_{0.35}$ los valores de campos hiperfino medio son más altos que los obtenidos a 292 K, lo cual es consecuente, ya que al bajar la temperatura se favorece más el orden magnético.

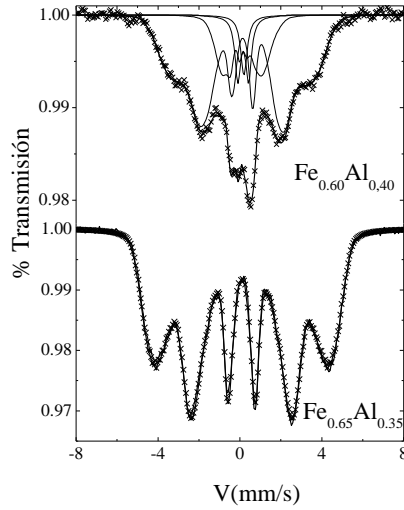


Fig. 3. Espectros Mössbauer tomados T = 77K

La Figura 4, muestra los ajustes experimentales (puntos y líneas negras) y teórico (puntos y líneas rojas). De nuevo se observa que las dos distribuciones para $\text{Fe}_{0.60}\text{Al}_{0.40}$ ajustan muy bien, situación similar a la observada a 292K para $\text{Fe}_{0.65}\text{Al}_{0.35}$ para el lado de campos altos, mientras que para bajos campos, la discrepancia es menor a 77K comparada con la observada a 292 K. También se reportan las configuraciones (n,m) para cada composición. Los valores de campo hiperfino medio obtenidos por Mössbauer y el calculado por el método binomial así como los principales parámetros binomiales se encuentran consignados en la tabla 2. También, se puede observar en esta la cercanía de los valores de $\langle H \rangle$ obtenidos por Mössbauer y el método de distribución binomial.

TABLA II
PARÁMETROS OBTENIDOS POR MÖSSBAUER Y EL
MÉTODO DE DISTRIBUCIÓN BINOMIAL A 77 K.

	$\langle H \rangle$ Tesla Möss	$\langle H \rangle$ Testa Binomial	α	β	η
$\text{Fe}_{0.60}\text{Al}_{0.40}$	7.1	7.5	0.052	0.014	0.0003
	22.5	23.4	0.070	0.016	0.0001
$\text{Fe}_{0.65}\text{Al}_{0.35}$	23.4	24.3	0.073	0.021	0.0002

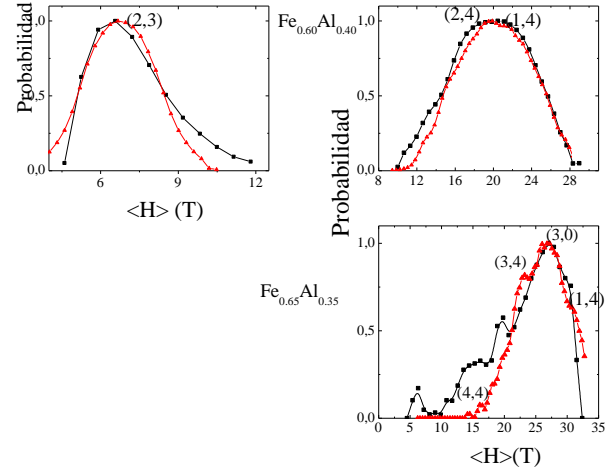


Fig. 4. Probabilidad Normalizada vs campo hiperfino. Las líneas con puntos y líneas negras corresponden a los campos obtenidos por Mössbauer y los puntos y líneas rojas corresponden al método de distribución binomial a T= 77 K.

IV. CONCLUSIONES

Para T = 292 K y 77 K, los valores de α y β en las dos composiciones; corresponden a la reducción $(\Delta H/H_0)$, H_0 referente al Fe puro (33T ó 330kOe). Los valores α implica la sustitución de un átomo de Fe por uno de Al en el primer vecindario, que origina una reducción de H_0 a ΔH de 16.9 T y 23.4T a 292 K y 77 K respectivamente, para $x = 0.60$ y de 22.3T y 24.3T a T = 292K y 77 K respectivamente, para $x = 0.65$. Los valores de β oscilan entre 0.014 y 0.021, implica la sustitución de un átomo de Fe por uno de Al en el segundo vecindario, que origina una reducción de H_0 a ΔH entre 4.6 T y 6.9T para las dos composiciones en las dos temperaturas, estos valores están de acuerdo con los reportados para aleaciones FeAl [10,11]. Los valores de η son muy pequeños y están reportados en las tablas I y II.

Las discrepancias observadas entre las líneas de distribución de campo obtenidas por Mössbauer y las obtenidas por el método de distribución binomial, se deben probablemente a características que no se consideran en el modelo, como: configuraciones que involucran clústers de largo alcance, terceros vecinos, ocurrencia de defectos, variaciones locales del parámetro de red que pueden ocurrir en los sistemas. Sin embargo, estos resultados permiten ver que el método de distribución binomial es un método matemático apropiado para predecir el campo hiperfino promedio y determinar las configuraciones

atómicas que dan las principales contribuciones al campo hiperfino. Los resultados muestran una buena concordancia con los ajustes experimentales.

AGRADECIMIENTOS

Agradecimiento a la Universidad Pontificia Bolivariana Seccional Bucaramanga a través de la Dirección General de Investigaciones por el soporte financiero del proyecto 003-0804 -9560.

BIOGRAFÍA



Claudia Paulina González Cuervo, Lugar de nacimiento Tunja, Licenciada en Ciencias de la Educación especialidad en Física y Matemáticas de la Universidad Pedagógica y Tecnológica de Colombia, Tunja, Magíster y Doctorado en

Ciencias Física de la Universidad del Valle, Cali. Intereses de investigación en Nano partículas, aleaciones, espectroscopia Mössbauer, difracción de rayos x, Microscopia electrónica, Nuevos Materiales.

REFERENCIAS

- [1] J. Y. Ping, D. G. Rancourt, R. A. Dunlap, *J. Magn. Mag. Mater.*, Vol. 103, pp285, 1992.
- [2] J. Restrepo, G. A. Pérez Alcázar, A. Bohórquez, *J. Appl. Phys.*, Vol. 81, pp 4101, 1997
- [3] G. A. Pérez Alcázar, E. Galvão da Silva, *J. Phys. F.* vol 17, pp 2323, 1997
- [4] R. A. Brand, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B*, vol 28, pp 417, 1987
- [5] D.J. Chakrabarti, *Metallurgical Trans. B*, vol 8 pp 121, 1977.
- [6] H. Bremers, Ch. Jarais, J. Hesse, S. Chadjivasilou, K.G. Efthimiadis, I. Tsoukalas, *J. Magn. Magn. Mater.*, vol 140-144, pp 63, 1995.
- [7] Claudia González, G.A. Pérez Alcázar, L.E. Zamora, J.A. Tabares, J.M. Greneche, *J. Phys.: Condens. Matter*, vol 14, pp 6531, (S0953-8984(02)32995-3), 2002.
- [8] Lúcia E. Zamora, G.A. Pérez Alcázar, Claudia González, J.M. Greneche, W. R. Aguirre, A. Bohórquez, E. M. Baggio Saitovich, D. Sánchez. *J. Magn. ad Mag. Mat.* Vol. 301, pp 495 – 502, (PAC: 76.80; 75.30;61.10) 2006
- [9] J. Restrepo, G.A. Pérez Alcázar, “interpretation base on a binomial method of the hyperfine field distributions of disordered $Fe_{0.9-x}Mn_{0.1}Al_x$ alloys” *J. Magn. ad Mag. Mat.* vol 213 pp 135-142(PII: S0304-8853(99)00541-7) 2000.
- [10] G.A. Pérez Alcázar, J.A. Plascak. E. Galvão da Silva, *J. Phys Rev. B*, vol 38, pp 2816, 1988.
- [11] M.B. Stearns, *Phys. Rev.* Vol. 147, pp 439, 1966.